



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類7 C10M 143/00 // C10N 30:02, 30:08, 40:25, C08F 210/16</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO00/60032</p> <p>(43) 国際公開日 2000年10月12日(12.10.00)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP00/01902</p> <p>(22) 国際出願日 2000年3月28日(28.03.00)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平11/89389 1999年3月30日(30.03.99) JP 特願平11/89408 1999年3月30日(30.03.99) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 三井化学株式会社(MITSUI CHEMICALS, INC.)(JP/JP) 〒100-6070 東京都千代田区霞が関3丁目2番5号 Tokyo, (JP) ザ ルブリゾル コーポレーション (THE LUBRIZOL CORPORATION)(US/US) 44092-2298 オハイオ州 ウィクリフ レークランド プールバード 29400 Ohio, (US)</p> <p>(72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 岡田圭司(OKADA, Keiji)(JP/JP) 〒740-0061 山口県玖珂郡和木町和木六丁目1番2号 三井化学株式会社内 Yamaguchi, (JP) 金重良輔(KANESHIGE, Ryousuke)(JP/JP) 〒299-0108 千葉県市原市千種海岸3番地 三井化学株式会社内 Chiba, (JP)</p>		<p>(74) 代理人 鈴木俊一郎(SUZUKI, Shunichiro) 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁目13番6号 五反田山崎ビル6階 鈴木国際特許事務所 Tokyo, (JP)</p> <p>(81) 指定国 BR, CN, IN, JP, KR, SG, US, 欧州特許 (BE, DE, ES, FR, GB, IT, NL, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>
<p>(54)Title: VISCOSITY REGULATOR FOR LUBRICATING OIL AND LUBRICATING OIL COMPOSITION</p> <p>(54)発明の名称 潤滑油用粘度調整剤および潤滑油組成物</p> <p>(57) Abstract A lubricant composition characterized in that it comprises a lubricating oil base (A) and an ethylene/C₃₋₂₀ α-olefin copolymer (B), that the content of the copolymer (B) is 1 to 20 wt.%, and that the copolymer (B) has the following properties: (1) the ethylene content (E) is 40 to 77 wt.%, (2) the weight-average molecular weight (Mw) in terms of polystyrene as determined by GPC is 80,000 to 400,000, (3) Mw/Mn is 2.4 or lower, (4) the melting point (Tm) as measured by DSC is 60°C or lower, (5) the ethylene content (E, wt.%) and the melting point (Tm, °C) as measured by DSC satisfy the following relationship (I): $3.31 \times E - 186 \geq Tm$ and (6) the proportion of α- and β-carbon atoms (V, %) in the carbon atoms of the backbone and of the long-chain branch(es) if present and the ethylene content (E, wt.%) satisfy the following relationship (II): $V \leq 10 - 0.1 \times E$ (II)</p>		

(57)要約

本発明の潤滑剤組成物は、(A)潤滑油基材と、(B)エチレンと炭素数3～20の α -オレフィンとの共重合体とを含有し、前記エチレンと炭素数3～20の α -オレフィンとの共重合体(B)を1～20重量%の割合で含有し、かつ前記エチレンと炭素数3～20の α -オレフィンとの共重合体(B)が下記の特性を有することを特徴としている；

- (1) エチレン含量(E)が40～77重量%であり、
- (2) GPCによるポリスチレン換算重量平均分子量(Mw)が80,000～400,000であり、
- (3) Mw/Mnが2.4以下であり、
- (4) DSCで測定した融点(Tm)が60℃以下であり、
- (5) エチレン含量(E:重量%)とDSCで測定した融点(Tm:℃)が下記式(I)を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq Tm \quad \dots (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合(V:%)と、エチレン含量(E:重量%)とが、下記式(II)を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \dots (II)$$

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LV	ラトヴィア	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	MA	モロッコ	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MC	モナコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MD	モルドヴァ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MG	マダガスカル	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ		共和国	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサオ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	MN	モンゴル	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MR	モーリタニア	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MW	マラウイ	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MX	メキシコ	US	米国
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MZ	モザンビーク	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	NE	ネジール	VN	ヴェトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NL	オランダ	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NO	ノルウェー	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	PL	ポーランド		
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PT	ポルトガル		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	RO	ルーマニア		
DK	デンマーク	KR	韓国				

明細書

潤滑油用粘度調整剤および潤滑油組成物

技術分野

本発明は、潤滑油用粘度調整剤および潤滑油組成物に関し、詳しくは、低温特性および高温での潤滑性に優れた潤滑油組成物が得られるような潤滑油用粘度調整剤およびこの粘度調整剤を含む潤滑油組成物に関する。

背景技術

石油製品は一般に温度が変化すると粘度が大きく変化するが、例えば自動車用などの潤滑油はこの粘度の温度依存性が小さいことが好ましい。このため潤滑油には温度依存性を小さくする目的で、粘度指数向上効果を有するエチレン・ α -オレフィン系共重合体が配合剤として広く用いられている。

また潤滑油は、低温になると潤滑油中のワックス分が結晶固化し流動性を失う。このような固化温度を下げるために潤滑油には流動点降下剤も含まれており、この流動点降下剤は、潤滑油中のワックス分が結晶化することによる３次元ネットワークの形成を阻害し潤滑油の流動点を低下させる。

ところでエチレン・ α -オレフィン系共重合体と流動点降下剤とを含む潤滑油の低温特性の中で、高せん断速度下における粘度は潤滑油基材とエチレン・ α -オレフィン系共重合体との相溶性で決まるが、低せん断速度下における粘度は、流動点降下剤の影響を強く受ける。また特定の組成のエチレン・ α -オレフィン系共重合体を用いると、流動点降下剤との相互作用により、流動点降下剤の効果

が著しく低下することが知られている（US 3,697,429号、US 3,551,336号明細書参照）。

このため潤滑油、特に低温特性に優れることが要求される潤滑油に配合されるエチレン・ α -オレフィン系共重合には、粘度指数向上効果に優れるとともに、流動点降下剤の働きを阻害しないことが求められる。

このような、流動点降下剤とエチレン・ α -オレフィン系共重合体との相互作用を防止するために、特定の重合装置と重合条件により得られる、不均一な組成分布を有するエチレン・ α -オレフィン系共重合体を粘度指数向上剤として用いることが提案されている

（特開昭60-228600号公報参照）。しかしながら、せん断速度にかかわらず、優れた低温特性を有する潤滑油は得られていなかった。

本発明者は、このような状況において鋭意研究した結果、特定のエチレン・ α -オレフィン系共重合体を使用することにより、上記のような相互作用による流動点降下剤の効果の減少を生じることなく、しかも低温時の潤滑油基材との相溶性を調整して、あらゆるせん断速度領域で低温特性に優れた潤滑油組成物が得られることを見出して、本発明を完成するに至った。

発明の目的

本発明は、低温特性、酸化安定性、高温での潤滑性および省燃費性に優れた潤滑油組成物を提供することを目的としている。

発明の開示

本発明に係る潤滑油用粘度調整剤は、エチレンと炭素数 3 ～ 20 の α -オレフィンとの共重合体であって、下記の特性を有するエチレン・ α -オレフィン共重合体からなることを特徴としている。

- (1) エチレン含量 (E) が 40 ～ 77 重量%であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (Mw) が 80,000 ～ 400,000 であり、
- (3) Mw/Mn が 2.4 以下であり、
- (4) DSC で測定した融点 (Tm) が 60℃ 以下であり、
- (5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (Tm : ℃) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq Tm \quad \dots \quad (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 (V : %) と、エチレン含量 (E : 重量%) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \dots \quad (II)$$

前記エチレン・ α -オレフィン共重合体は、エチレン・プロピレン共重合体が好ましい。

本発明に係る潤滑油組成物は、

(A) 潤滑油基材と、

(B) エチレンと炭素数 3 ～ 20 の α -オレフィンとの共重合体であって、下記の特性を有するエチレン・ α -オレフィン共重合体とを含有し、

前記エチレン・ α -オレフィン重合体 (B) を 1 ~ 20 重量% の割合で含有することを特徴としている。

- (1) エチレン含量 (E) が 40 ~ 77 重量% であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (M_w) が 80,000 ~ 400,000 であり、
- (3) M_w / M_n が 2.4 以下であり、
- (4) DSC で測定した融点 (T_m) が 60 °C 以下であり、
- (5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (T_m : °C) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq T_m \quad \cdots \quad (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 (V : %) と、エチレン含量 (E : 重量%) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \cdots \quad (II)$$

また、本発明に係る潤滑油組成物は、

前記 (A) 潤滑油基材と、前記 (B) エチレン・ α -オレフィン共重合体とともに、さらに (C) 流動点降下剤とを含有し、

前記 (B) エチレン・ α -オレフィン共重合体を 0.1 ~ 5 重量% の割合で含有し、

前記 (C) 流動点降下剤を 0.05 ~ 5 重量% の割合で含有することを特徴としている。

前記 (B) エチレン・ α -オレフィン共重合体は、下記の特性を有する (B-1) エチレン・ α -オレフィン共重合体が好ましい；

- (1) エチレン含量 (E) が 65 ~ 77 重量% であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (Mw) が 80,000 ~ 400,000 であり、
- (3) Mw / Mn が 2.4 以下であり、
- (4) DSC で測定した融点 (Tm) が 15 ~ 60 °C であり、
- (5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (Tm : °C) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq T_m \quad \cdots \quad (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 (V : %) と、エチレン含量 (E : 重量%) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \cdots \quad (II)$$

また、前記 (B) エチレン・ α -オレフィン共重合体は、下記の特性を有する (B-2) エチレン・ α -オレフィン共重合体であることが好ましい；

- (1) エチレン含量 (E) が 40 ~ 55 重量% であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (Mw) が 80,000 ~ 400,000 であり、
- (3) Mw / Mn が 2.4 以下であり、
- (4) DSC で測定した融点 (Tm) が -20 °C 以下であり、
- (5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (Tm : °C) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq T_m \quad \cdots \quad (I)$$

かつ

(6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 ($V : \%$) と、エチレン含量 ($E : \text{重量}\%$) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \cdots \quad (\text{II})$$

このような潤滑油組成物において、前記エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) は、エチレン・プロピレン共重合体が好ましい。

前記エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) は、

190℃、2.16 kg 荷重で測定したメルトインデックス (I_2) と、190℃、1.0 kg 荷重で測定したメルトインデックス (I_{10}) の比 (I_{10}/I_2) が、8 以上 16 以下の共重合体であることが好ましい。

また、前記エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) は、

190℃、2.16 kg 荷重で測定したメルトインデックス (I_2) と、190℃、1.0 kg 荷重で測定したメルトインデックス (I_{10}) の比 (I_{10}/I_2) が、5 以上 8 未満の共重合体であることが好ましい。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係る粘潤滑油用粘度調整剤および潤滑油組成物について具体的に説明する。

潤滑油用粘度調整剤

本発明に係る潤滑油用粘度調整剤は、以下のような特性を有するエチレンと α -オレフィンとの共重合体（以後、本明細書では、単にエチレン・ α -オレフィン共重合体ということもある）からなる。

エチレン・ α -オレフィン共重合体は、エチレン含量（E）（エチレンから導かれる繰返し単位の含有割合）が、通常40～77重量%の範囲にある。とくにエチレン含量（E）は、65～77重量%、好ましくは68～74重量%、特に好ましくは68～72重量%の範囲にあるか、あるいは、40～55重量%、好ましくは43～53重量%、特に好ましくは45～51重量%であることが好ましい。

エチレン含量がこのような範囲にあると、充分な低温特性の潤滑油組成物が得られ、また、エチレン・ α -オレフィン共重合体のエチレンシーケンス部分の結晶化により、潤滑油組成物が低温時にゼリー状になることがない。

エチレン・ α -オレフィン共重合体中のエチレン含量（E）は、「高分子分析ハンドブック」（日本分析化学会、高分子分析研究懇談会編、紀伊国屋書店発行）に記載の方法に従って ^{13}C -NMRで測定することができる。

炭素数3～20の α -オレフィンとしては、具体的に、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、4-エチル-1-ヘキセン、3-エチル-1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセンおよび1-エイコセンなどが挙げられる。

これらの α -オレフィンのなかでも、特にプロピレンが好ましい。すなわち、エチレン・ α -オレフィン共重合体としてはエチレン・ブ

ロピレン共重合体が好適である。

また本発明で用いられるエチレン・ α -オレフィン共重合体は、実質的にエチレンから誘導される構成単位および α -オレフィンから誘導される構成単位のみからなっていることが好ましい。このような構成のエチレン・ α -オレフィン共重合体は低温特性に特に優れている。

エチレン・ α -オレフィン共重合体の分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）によるポリスチレン換算の重量平均分子量（Mw）で80,000～400,000である。重量平均分子量（Mw）が上記範囲内にあると、粘度指数向上性能（増粘性）に優れており、このため特定の潤滑油粘度を得るためのエチレン・ α -オレフィン共重合体の必要量が少なくよく、低温時にゼリ、一化が起こりにくく、また、せん断安定性も良い。

このうち、エチレン・ α -オレフィン共重合体の重量平均分子量（Mw）が260,000～380,000、好ましくは270,000～350,000の範囲にある場合には、特に潤滑油の粘度指数を向上させることができる。また、この重量平均分子量（Mw）が100,000～240,000、好ましくは120,000～240,000の範囲にある場合には、特に潤滑油粘度のせん断安定性を向上させることができる。

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）による測定は、温度：140℃、溶媒：オルトジクロロベンゼンの条件下で行なわれる。

エチレン・ α -オレフィン共重合体の分子量分布を示す指標である

M_w / M_n (M_w : 重量平均分子量、 M_n : 数平均分子量) は、2.4 以下、好ましくは 2.2 以下であるのが望ましい。分子量分布が 2.4 以下であると、潤滑油粘度のせん断安定性が良好であり好ましい。

エチレン・ α -オレフィン共重合体の融点 (T_m) は、示差走査型熱量計 (DSC) による測定で、60℃ 以下である。

特に、エチレン含量 (E) が 65 ~ 77 重量% の範囲にあるエチレン・ α -オレフィン共重合体の融点 (T_m) は、15 ~ 60℃、好ましくは 25 ~ 50℃、さらに好ましくは、25 ~ 45℃ の範囲であるのが望ましい。また、エチレン含量 (E) が 40 ~ 55 重量% の範囲にあるエチレン・ α -オレフィン共重合体の融点 (T_m) は、示差走査型熱量計 (DSC) による測定で、-20℃ 以下、好ましくは -25℃ 以下、さらに好ましくは、-30℃ 以下であるのが望ましい。

融点は、示差走査型熱量計 (DSC) の吸熱曲線を求め、最大ピーク位置の温度を融点とした。測定は、試料をアルミパンに詰め、10℃/分で 200℃ まで昇温し、200℃ で 5 分間保持した後、20℃/分で -150℃ まで降温し、次いで 10℃/分で昇温する際の、すなわち 2nd ランの吸熱曲線より求めた。

エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (T_m : °C) とは、以下の関係式を満たすのが好ましい。

$$3.31 \times E - 186 \geq T_m \quad \dots (I)$$

式 (I) は組成分布の目安であり、エチレン含量と融点との関係が式 (I) の範囲を外れると、エチレン・ α -オレフィン共重合体の

組成分布が広くなり潤滑油の耐寒性が低下したり、高エチレン含量部分が存在することによる潤滑油の濁り（HAZE）等の問題を引き起こす。本発明では、エチレン・ α -オレフィン共重合体は、後述するメタロセン化合物と、イオン化イオン性化合物とからなる触媒によりエチレン・ α -オレフィンを共重合して得られたものが、組成分布の点から好ましい。

組成分布パラメータとしては、上記式（I）において、

$3.31 \times E - 192 \geq Tm \quad \dots (I')$ であることが好ましく、さらに、 $3.31 \times E - 193 \geq Tm \quad \dots (I'')$ であることが特に好ましい。

エチレン・ α -オレフィン共重合体に主鎖および長分岐鎖がある場合には、長分岐鎖も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合（V：％）と、エチレン含量（E：重量％）とが、下記式（II）を満たすのが好ましい。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \dots (II)$$

ここで、 $\alpha\beta$ 炭素とは、エチレン・ α -オレフィン共重合体の主鎖（または長分岐鎖）中の2級炭素であって、その2級炭素から最も近い2個の3級炭素のうち、一方が α 位の炭素（主鎖中の隣接炭素）であり、他方が β 位の炭素（主鎖中の α 位の炭素に隣接する炭素）であるような炭素をいう。 $\alpha\beta$ 炭素の割合（V：％）とは、エチレン・ α -オレフィン共重合体を形成する全炭素中の、このような $\alpha\beta$ 炭素の割合である。 $\alpha\beta$ 炭素の割合（V：％）が上記式（II）を満たす場合には、潤滑油の低温での流動性を向上させることができるため好ましい。さらに高温における潤滑特性を向上させること

もできる。

α β 炭素の割合 (V : %) は、共重合体の ^{13}C - NMR を測定し、J. C. Randall による、Macromolecules (11, 33 (1978)) に記載の方法に従って求めることができる。

特にエンジン油の油膜強度が必要とされる場合には、エチレン・ α -オレフィン共重合体の 190℃、2.16 kg 荷重で測定したメルトインデックスと、190℃、1.0 kg 荷重で測定したメルトインデックスとの比 (I_{10}/I_2) が、8 以上 16 以下、好ましくは 8.0 以上 16 以下、より好ましくは 8.0 以上 16.0 以下、さらに好ましくは 8.0 以上 13 以下、特に好ましくは 8.0 以上 13.0 以下であるのが望ましい。

また、特にエンジン油のせん断安定性が必要とされる場合には、エチレン・ α -オレフィン共重合体の 190℃、2.16 kg 荷重で測定したメルトインデックスと、190℃、1.0 kg 荷重で測定したメルトインデックスとの比 (I_{10}/I_2) が、5 以上 8 未満、好ましくは 5.0 以上 8.0 未満、より好ましくは 5.5 以上 7.5 未満、さらに好ましくは 5.8 以上 7.0 以下であるのが望ましい。

このようなエチレン・ α -オレフィン共重合体は、潤滑油基材に配合したときに粘度指数の向上効果が大きく、また流動点降下剤の効果を阻害することが少ない。

このようなエチレン・ α -オレフィン共重合体を粘度調整剤として用いると、次世代の北米潤滑油企画である GF-3 規格の低温特性

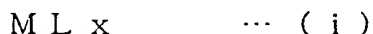
の規格を満たしうるような潤滑油を得ることができる。なお、潤滑油がGF-3規格を満たすかどうかは、後述するCCS、MRVを測定することにより判断することが可能である。

このような本発明に係る潤滑油用粘度調整剤として使用される係るエチレン・ α -オレフィン共重合体は、エチレンと炭素数3～20の α -オレフィンと、必要に応じて他のモノマーをオレフィン重合用触媒の存在下に共重合させることにより得ることができる。

このようなオレフィン重合用触媒としては、ジルコニウム、ハフニウム、チタニウムなどの遷移金属の化合物と、有機アルミニウム化合物（有機アルミニウムオキシ化合物）および／またはイオン化イオン性化合物とからなる触媒が使用できるが、本発明では、これらのうち、周期表第4族などから選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン性化合物と、からなるメタロセン系触媒が特に好ましく用いられる。

次に、メタロセン系触媒について説明する。

メタロセン系触媒を形成する周期表第4族から選ばれる遷移金属のメタロセン化合物は、具体的には、下記一般式(i)で表される。



式(i)中、Mは周期表第4族から選ばれる遷移金属であり、具体的にジルコニウム、チタンまたはハフニウムであり、xは遷移金属の原子価である。

Lは遷移金属に配位する配位子であり、これらのうち少なくとも1個の配位子Lはシクロペンタジエニル骨格を有する配位子であり、

このシクロペンタジエニル骨格を有する配位子は置換基を有していてもよい。

シクロペンタジエニル骨格を有する配位子としては、たとえば、シクロペンタジエニル基、メチルシクロペンタジエニル基、エチルシクロペンタジエニル基、*n*-または*i*-プロピルシクロペンタジエニル基、*n*-、*i*-、*sec*-、*t*-、ブチルシクロペンタジエニル基、ヘキシルシクロペンタジエニル基、オクチルシクロペンタジエニル基、ジメチルシクロペンタジエニル基、トリメチルシクロペンタジエニル基、テトラメチルシクロペンタジエニル基、ペンタメチルシクロペンタジエニル基、メチルエチルシクロペンタジエニル基、メチルプロピルシクロペンタジエニル基、メチルブチルシクロペンタジエニル基、メチルヘキシルシクロペンタジエニル基、メチルベンジルシクロペンタジエニル基、エチルブチルシクロペンタジエニル基、エチルヘキシルシクロペンタジエニル基、メチルシクロヘキシルシクロペンタジエニル基などのアルキルまたはシクロアルキル置換シクロペンタジエニル基、さらに

インデニル基、4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基、フルオレニル基などが挙げられる。

これらの基は、ハロゲン原子、トリアルキルシリル基などで置換されていてもよい。

これらのうちでは、アルキル置換シクロペンタジエニル基が特に好ましい。

一般式 (i) で示される化合物が配位子 L としてシクロペンタジエニル骨格を有する基を 2 個以上有する場合には、そのうち 2 個の

シクロペンタジエニル骨格を有する基同士は、エチレン、プロピレンなどのアルキレン基、イソプロピリデン、ジフェニルメチレンなどの置換アルキレン基、シリレン基またはジメチルシリレン基、ジフェニルシリレン基、メチルフェニルシリレン基などの置換シリレン基などを介して結合されていてもよい。

シクロペンタジエニル骨格を有する配位子以外のLとしては、炭素原子数が1～12の炭化水素基、アルコキシ基、アリーロキシ基、スルホン酸含有基 ($-SO_3R^3$)、ハロゲン原子または水素原子 (ここで、 R^3 はアルキル基、ハロゲン原子で置換されたアルキル基、アリール基またはハロゲン原子またはアルキル基で置換されたアリール基である。) などが挙げられる。

炭素原子数が1～12の炭化水素基としては、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基などが挙げられ、より具体的には、

メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基などのアルキル基、

シクロペンチル基、シクロヘキシル基などのシクロアルキル基、フェニル基、トリル基などのアリール基、

ベンジル基、ネオフィル基などのアラルキル基が挙げられる。

また、アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、イソブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*t*-ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキソキシ基、オクトキシ基などが挙げられる。

アリーロキシ基としては、フェノキシ基などが挙げられ、

スルホン酸含有基 ($-\text{SO}_3\text{R}^+$) としては、メタンスルホナト基、
p-トルエンスルホナト基、トリフルオロメタンスルホナト基、p-ク
ロルベンゼンスルホナト基などが挙げられる。

ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられ
る。

以下に、Mがジルコニウムであり、かつシクロペンタジエニル骨
格を有する配位子を少なくとも2個含むメタロセン化合物を例示す
る。

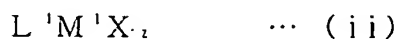
ビス(メチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド、
ビス(エチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド、
ビス(n-プロピルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリ
ド、

ビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、

ビス(4,5,6,7-テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロリ
ドなど。

また上記のような化合物においてジルコニウム金属を、チタニウ
ム金属、ハフニウム金属に置き換えた化合物を挙げることできる。

また本発明ではメタロセン化合物として下記一般式(ii)で表さ
れる化合物を用いることもできる。

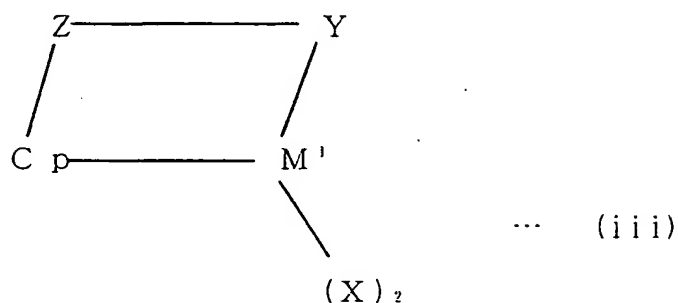


(式中Mは、周期表第4族またはランタニド系列の金属であり、

L'は、非局在化 π 結合基の誘導体であり、金属M'活性サイトに拘
束幾何形状を付与しており、

Xは、それぞれ独立に水素、ハロゲンまたは20以下の炭素、ケイ素またはゲルマニウムを含有する炭化水素基、シリル基またはゲルミル基である。)

このような一般式(ii)で示される化合物のうちでも、下記一般式(iii)で示される化合物が好ましい。



式中、M'はチタン、ジルコニウムまたはハフニウムであり、Xは、上記と同様である。

CpはM'に π 結合しており、かつ置換基Zを有する置換シクロペンタジエニル基である。

Zは酸素、イオウ、ホウ素または周期表第14族の元素（たとえばケイ素、ゲルマニウムまたは錫）であり、

Yは窒素、リン、酸素またはイオウを含む配位子であり、

ZとYとで縮合環を形成してもよい。

このような一般式(iii)で示される化合物としては、具体的に、

[ジメチル(1-ブチルアミド)(テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル)シラン]チタンジクロリド、

[(1-ブチルアミド)(テトラメチル- η^5 -シクロペンタジエニル)-1,2-エタンジイル]チタンジクロリド、

[ジベンジル(1-ブチルアミド)(テトラメチル- η^5 -シクロペン

タジエニル) シラン] チタンジクロリド、

[ジメチル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) シラン] ジベンジルチタン、

[ジメチル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) シラン] ジメチルチタン、

[(t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) -1, 2-エタンジイル] ジベンジルチタン、

[(メチルアミド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) -1, 2-エタンジイル] ジネオペンチルチタン、

[(フェニルホスフィド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) メチレン] ジフェニルチタン、

[ジベンジル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) シラン] ジベンジルチタン、

[ジメチル (ベンジルアミド) (η^3 -シクロペンタジエニル) シラン] ジ(トリメチルシリル) チタン、

[ジメチル (フェニルホスフィド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) シラン] ジベンジルチタン、

[(テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) -1, 2-エタンジイル] ジベンジルチタン、

[2- η^3 -(テトラメチル-シクロペンタジエニル) -1-メチル-エタノレート (2-)] ジベンジルチタン、

[2- η^3 -(テトラメチル-シクロペンタジエニル) -1-メチル-エタノレート (2-)] ジメチルチタン、

[2-((4a, 4b, 8a, 9, 9a- η)-9H-フルオレン-9-イル) シクロヘキサ

ノレート (2-)] ジメチルチタン、

[2- ((4a, 4b, 8a, 9, 9a-η)-9H-フルオレン-9-イル) シクロヘキサノレート (2-)] ジベンジルジルチタンなどが挙げられる。

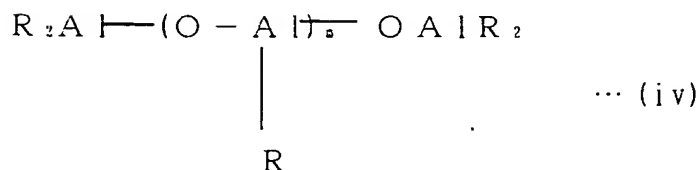
また上記のような化合物においてチタニウム金属を、ジルコニウム金属、ハフニウム金属に置き換えた化合物を挙げることもできる。

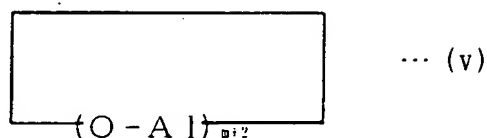
これらのメタロセン化合物は、1種単独でまたは2種以上組み合わせる用いることができる。

本発明では、前記一般式 (i) で表されるメタロセン化合物としては、中心の金属原子がジルコニウムであり、少なくとも2個のシクロペンタジエニル骨格を含む配位子を有するジルコノセン化合物が好ましく用いられる。また前記一般式 (ii) または (iii) で表されるメタロセン化合物としては、中心の金属原子がチタンであることが好ましい。上記メタロセン化合物のなかでは、一般式 (iii) で表され、中心の金属原子がチタンである化合物が特に好ましい。

メタロセン系触媒を形成する有機アルミニウムオキシ化合物は、従来公知のアルミノオキサンであってもよく、またベンゼン不溶性の有機アルミニウムオキシ化合物であってもよい。

従来公知のアルミノオキサンは、具体的には、下記一般式で表される。





(上記一般式 (iv) および (v) において、R はメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基などの炭化水素基であり、好ましくはメチル基、エチル基、とくに好ましくはメチル基であり、m は 2 以上、好ましくは 5 ~ 40 の整数である。) ここで、このアルミノオキサンは式 (OAl(R¹)) で表されるアルキルオキシアルミニウム単位および式 (OAl(R²)) で表されるアルキルオキシアルミニウム単位 [ここで、R¹ および R² は R と同様の炭化水素基を例示することができ、R¹ および R² は相異なる基を表す] からなる混合アルキルオキシアルミニウム単位から形成されていてもよい。

メタロセン系触媒を形成するイオン化イオン性化合物としては、ルイス酸、イオン性化合物などを例示することができる。

ルイス酸としては、BR₃ (R は、フッ素、メチル基、トリフルオロメチル基などの置換基を有していてもよいフェニル基またはフッ素である。) で示される化合物が挙げられ、たとえば

トリフルオロボロン、

トリフェニルボロン、トリス (4-フルオロフェニル) ボロン、トリス (3, 5-ジフルオロフェニル) ボロン、トリス (4-フルオロメチルフェニル) ボロン、トリス (ペンタフルオロフェニル) ボロン、トリス (p-トリル) ボロン、トリス (o-トリル) ボロン、トリス (3, 5-ジメチルフェニル) ボロンなどが挙げられる。

イオン性化合物としては、トリアルキル置換アンモニウム塩、N,

N-ジアルキルアニリニウム塩、ジアルキルアンモニウム塩、トリアルキルホスフォニウム塩などを挙げることができる。

具体的に、トリアルキル置換アンモニウム塩としては、たとえば
トリエチルアンモニウムテトラ（フェニル）ホウ素、
トリプロピルアンモニウムテトラ（フェニル）ホウ素、
トリ（n-ブチル）アンモニウムテトラ（フェニル）ホウ素、
トリメチルアンモニウムテトラ（p-トリル）ホウ素、
トリメチルアンモニウムテトラ（o-トリル）ホウ素、
トリブチルアンモニウムテトラ（ペンタフルオロフェニル）ホウ素、
トリプロピルアンモニウムテトラ（o, p-ジメチルフェニル）ホウ素、
トリブチルアンモニウムテトラ（m, m-ジメチルフェニル）ホウ素、
トリブチルアンモニウムテトラ（p-トリフルオロメチルフェニル）ホウ素、
トリ（n-ブチル）アンモニウムテトラ（o-トリル）ホウ素などが挙げられる。

N, N-ジアルキルアニリニウム塩としては、たとえば
N, N-ジメチルアニリニウムテトラ（フェニル）ホウ素、
N, N-ジエチルアニリニウムテトラ（フェニル）ホウ素、
N, N-2, 4, 6-ペンタメチルアニリニウムテトラ（フェニル）ホウ素などが挙げられる。

ジアルキルアンモニウム塩としては、たとえば
ジ（1-プロピル）アンモニウムテトラ（ペンタフルオロフェニル）ホウ素

ル) ホウ素、

ジシクロヘキシルアンモニウムテトラ (フェニル) ホウ素などが挙げられる。

さらにイオン性化合物として、トリフェニルカルベニウムテトラキス (ペンタフルオロフェニル) ボレート、N,N-ジメチルアニリニウムテトラキス (ペンタフルオロフェニル) ボレート、フェロセニウムテトラ (ペンタフルオロフェニル) ボレートなどを挙げることもできる。特に、イオン化イオン性化合物がエチレン・ α -オレフィン共重合体の組成分布を制御する点で好適に用いられる。

またメタロセン系触媒を形成するに際しては、有機アルミニウムオキシ化合物および／またはイオン化イオン性化合物とともに、有機アルミニウム化合物を用いてもよい。

有機アルミニウム化合物としては、下記一般式 (vi) で表される化合物が挙げられる。



式中、 R^1 は炭素原子数が1～15、好ましくは1～4の炭化水素基であり、Xはハロゲン原子または水素原子であり、nは1～3である。

このような炭素原子数が1～15の炭化水素基としては、たとえばアルキル基、シクロアルキル基またはアリール基が挙げられ、具体的には、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、イソブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、フェニル基、トリル基などが挙げられる。

このような有機アルミニウム化合物として具体的には、以下のよう化合物が挙げられる。

トリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリイソプロピルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリオクチルアルミニウム、トリ2-エチルヘキシルアルミニウムなどのトリアルキルアルミニウム；

一般式 $(i-C_4H_9)_xAl_y(C_3H_7)_z$ (式中、 x 、 y 、 z は正の数であり、 $z \geq 2x$ である。) で表されるイソプレニルアルミニウムなどのアルケニルアルミニウム；

トリイソプロペニルアルミニウムなどのトリアルケニルアルミニウム；

ジメチルアルミニウムクロリド、ジエチルアルミニウムクロリド、ジイソプロピルアルミニウムクロリド、ジイソブチルアルミニウムクロリド、ジメチルアルミニウムブロミドなどのジアルキルアルミニウムハライド；

メチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムセスキクロリド、イソプロピルアルミニウムセスキクロリド、ブチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムセスキブロミドなどのアルキルアルミニウムセスキハライド；

メチルアルミニウムジクロリド、エチルアルミニウムジクロリド、イソプロピルアルミニウムジクロリド、エチルアルミニウムジブロミドなどのアルキルアルミニウムジハライド；

ジエチルアルミニウムヒドリド、ジブチルアルミニウムヒドリドなどのジアルキルアルミニウムヒドリド；

エチルアルミニウムジヒドريد、プロピルアルミニウムジヒドريدなどのアルキルアルミニウムジヒドريدなど。

本発明では、上記のようなメタロセン系触媒の存在下にエチレンおよび炭素数 3 ～ 20 の α -オレフィン、必要に応じて他のモノマーを、通常液相で共重合させる。この際、重合溶媒として一般に炭化水素溶媒が用いられるが、プロピレン等の α -オレフィンを用いてもよい。

重合の際に用いられる炭化水素溶媒としては、

ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、灯油などの脂肪族炭化水素およびそのハロゲン誘導体；シクロヘキサン、メチルシクロペンタン、メチルシクロヘキサンなどの脂環族炭化水素およびそのハロゲン誘導体；ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素およびクロロベンゼンなどのハロゲン誘導体などが用いられる。これら溶媒は、1 種単独でまたは 2 種以上組み合わせる用いることができる。

エチレンおよび炭素数 3 ～ 20 の α -オレフィン、必要に応じて他のモノマーは、バッチ法、連続法 のいずれの方法でも共重合することができるが、連続法で共重合することが好ましく、特に攪拌層型反応器を用い連続法で共重合することが好ましい。共重合を連続法で実施するに際して、上記メタロセン系触媒は、たとえば以下のような濃度で用いられる。

重合系内のメタロセン化合物の濃度は、通常、0.00005 ～ 0.1 ミリモル／リットル（重合容積）、好ましくは 0.0001 ～ 0.05 ミリモル／リットルである。また有機アルミニウムオキ

シ化合物は、重合系内のメタロセン化合物中の遷移金属に対するアルミニウム原子のモル比（Al／遷移金属）で、1～10000、好ましくは10～5000の量で供給される。

イオン化イオン性化合物は、重合系内のメタロセン化合物に対するイオン化イオン性化合物のモル比（イオン化イオン性化合物／メタロセン化合物）で、0.5～30、好ましくは1～25の量で供給される。

また有機アルミニウム化合物が用いられる場合には、通常、約0～5ミリモル／リットル（重合容積）、好ましくは約0～2ミリモル／リットルとなるような量で用いられる。

上記のようなメタロセン系触媒の存在下に、エチレンおよび炭素数3～20の α -オレフィン、必要に応じて他のモノマーを共重合させる場合には、共重合反応は、通常、温度が -20°C ～ 150°C 、好ましくは 0°C ～ 120°C 、さらに好ましくは 0°C ～ 100°C で、圧力が0を超えて 80 kg/cm^2 以下、好ましくは0を超えて 50 kg/cm^2 以下の条件下に行なわれる。上記重合条件は、連続重合法では一定であることが好ましい。

反応時間（共重合が連続法で実施される場合には平均滞留時間）は、触媒濃度、重合温度などの条件によっても異なるが、通常、5分～5時間、好ましくは10分～3時間である。

エチレンおよび炭素数3～20の α -オレフィン、必要に応じて他のモノマーは、上述のような特定組成のエチレン・ α -オレフィン系共重合体を得られるような量で重合系に供給される。さらに共重合に際しては、水素などの分子量調節剤を用いることもできる。

上記のようにしてエチレンおよび炭素数 3 ～ 20 の α -オレフィン、必要に応じて他のモノマーを共重合させると、エチレン・ α -オレフィン共重合体は、通常これを含む重合液として得られる。この重合液は、常法により処理され、本発明で用いられるエチレン・ α -オレフィン共重合体を得られる。

潤滑油組成物

本発明に係る潤滑油組成物は、潤滑油基材 (A) と前記したエチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) とを含有する潤滑油組成物、または潤滑油基材 (A) と特定のエチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) と流動点降下剤 (C) とを含有する潤滑油組成物である。

まず本発明に係る潤滑油組成物を形成する各成分について説明する。

(A) 潤滑油基材

本発明で用いられる潤滑油基材としては、鉱物油、およびポリ α -オレフィン、ポリオールエステル、ジオクチルフタレート、ジオクチルセバケート等のジエステル類、ポリアルキレングリコール等の合成油が挙げられ、鉱物油または鉱物油と合成油とのブレンドが好ましく用いられる。鉱物油は一般に脱ワックス等の精製工程を経て用いられ、精製の仕方により幾つかの等級があるが、一般に 0.5 ～ 10 % のワックス分を含む鉱物油が使用される。たとえば、水素分解精製法で製造された流動点の低い、粘度指数の高い、イソパラフィンを主体とした組成の高度精製油を用いることもできる。また 40℃ における動粘度が 10 ～ 200 cSt のものが一般的に使用される。

(B) エチレン・ α -オレフィン共重合体

本発明で用いられるエチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) として、上記したエチレン・ α -オレフィン共重合体が使用される。

特に、本発明に係る潤滑油組成物では、エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) として、下記の特性を有する (B-1) エチレン・ α -オレフィン共重合体であることが好適に使用される。

- (1) エチレン含量 (E) が 65 ～ 77 重量%であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (Mw) が 80,000 ～ 400,000 であり、
- (3) Mw/Mn が 2.4 以下であり、
- (4) DSC で測定した融点 (Tm) が 15 ～ 60℃であり、
- (5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (Tm : ℃) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq Tm \quad \dots \quad (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 (V : %) と、エチレン含量 (E : 重量%) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \dots \quad (II)$$

また、前記 (B) エチレン・ α -オレフィン共重合体として、下記の特性を有する (B-2) エチレン・ α -オレフィン共重合体を好適に使用することもできる；

- (1) エチレン含量 (E) が 40 ～ 55 重量%であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (Mw) が 80,

0 0 0 ~ 4 0 0, 0 0 0 であり、

(3) M_w / M_n が 2.4 以下であり、

(4) DSC で測定した融点 (T_m) が -20°C 以下であり、

(5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (T_m : $^\circ\text{C}$) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq T_m \quad \cdots \quad (I)$$

かつ

(6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 (V : %) と、エチレン含量 (E : 重量%) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \cdots \quad (II)$$

前記エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) は、

190°C 、2.16 kg 荷重で測定したメルトインデックスと、 190°C 、1.0 kg 荷重で測定したメルトインデックスの比 (I_1 / I_2) が、8 以上 16 以下の共重合体であることが好ましい。

また、前記エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) は、

190°C 、2.16 kg 荷重で測定したメルトインデックスと、 190°C 、1.0 kg 荷重で測定したメルトインデックスの比 (I_1 / I_2) が 5 以上 8 未満の共重合体であることが好ましい。

(C) 流動点降下剤

本発明で用いられる流動点降下剤としては、アルキル化ナフタレン、メタクリル酸アルキルの (共) 重合体、アクリル酸アルキルの (共) 重合体、フマル酸アルキルと酢酸ビニルの共重合体、 α -オレフィン重合体、 α -オレフィンとスチレンの共重合体等が挙げら

れるが、中でも、メタクリル酸アルキルの（共）重合体、アクリル酸アルキルの（共）重合体が好適に用いられる。

潤滑油組成物

本発明に係る第1の態様の潤滑油組成物は、上述したような潤滑油基材（A）とエチレン・ α -オレフィン共重合体（B）とを含有し、該潤滑油組成物中にエチレン・ α -オレフィン共重合体が1～20重量%、好ましくは5～10重量%の量で含有されている（残分は潤滑油基材（A）および後述の配合剤）。

このような潤滑油組成物は、温度依存性が小さく低温特性に優れる。この潤滑油組成物は、そのまま潤滑油用途に使用することができ、またこの潤滑油組成物にさらに潤滑油基材、流動点降下剤などを配合して潤滑油用途に使用することもできる。

また、本発明に係る第2の態様の潤滑油組成物は、上述したような潤滑油基材（A）とエチレン・ α -オレフィン共重合体（B）とともに、流動点降下剤（C）とを含有している。このような潤滑油組成物中に、エチレン・ α -オレフィン共重合体（B）が0.1～5重量%、好ましくは0.2～1.5重量%、さらに好ましくは0.25～1.5重量%、特に好ましくは0.30～1.5重量%の量で含有され、流動点降下剤（C）が0.05～5重量%、好ましくは0.1～3重量%、さらに好ましくは0.1～2重量%、最も好ましくは0.2～1.5重量%の量で含有されている（残分は潤滑油基材（A）および後述の配合剤）。このような本発明の潤滑油組成物において、エチレン・ α -オレフィン共重合体（B）の量が0.1重量%以上であると、粘度向上の効果が得られ、また、5重量%

以下であると、流動点性降下剤（C）の効果を阻害することがないため好ましく、エチレン・ α -オレフィン共重合体（B）の量が上述の範囲にある場合には、粘度向上効果に優れ、かつ低温での流動性が良好な潤滑油組成物を得ることができる。

このような潤滑油組成物は、温度依存性が小さく、かつエチレン・ α -オレフィン共重合体と流動点降下剤との相互作用による流動点の上昇が少なく、あらゆるせん断速度領域で低温特性に優れている。またこのような潤滑油組成物は高温特性にも優れており、良好な潤滑性能を示すため、省燃費性にも優れている。

また本発明に係る潤滑油組成物は、潤滑油基材（A）、エチレン・ α -オレフィン共重合体（B）および流動点降下剤（C）以外に、メタクリル酸アルキルの（共）重合体、水添SBR、SEBSなどの粘度指数向上効果を有する配合剤、清浄剤、錆止め添加剤、分散剤、極圧剤、消泡剤、酸化防止剤、金属不活性化剤などの配合剤を配合してもよい。

本発明に係る潤滑油組成物は、潤滑油基材（A）にエチレン・ α -オレフィン共重合体（B）および必要に応じて配合剤を混合または溶解するか、または潤滑油基材（A）にエチレン・ α -オレフィン共重合体（B）および流動点降下剤（C）、さらに必要に応じてその他の配合剤を混合または溶解することにより従来公知の方法で調製することができる。

なお、本明細書においては、特に明示しない限り、材料の量、反応条件、分子量、炭素原子数などの実施例を除く全ての数値は、技術的に不明確にならない範囲で「約」という語を補って理解される

ことが好ましい。

発明の効果

本発明に係る潤滑油組成物は、低温特性および高温での潤滑性に優れている。

実施例

以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

なお本実施例において各種物性は以下のようにして測定した。

エチレン含量 (E)

日本電子(株)製のLA500型核磁気共鳴装置を用い、オルトジクロルベンゼンとベンゼン-d₆との混合溶媒(オルトジクロルベンゼン/ベンゼン-d₆=3/1~4/1(体積比))中、120℃、パルス幅45°パルス、パルス繰返し時間5.5秒で測定した。

100℃での粘度 (K.V.)

ASTM D 445に基づいて測定を行なった。なお本実施例ではK.V.が10mm²/秒程度となるように調整した。

Cold Cranking Simulator (CCS)

ASTM D 2602に基づいて測定を行なった。CCSはクラック軸における低温での撹動性(始動性)の評価に用いられ、値が小さい程、潤滑油の低温特性がよいことを示す。

Mini-Rotary Viscometer (MRV)

ASTM D 3829、D 4684に基づいて測定を行なった。MRVはオイルポンプが低温でポンピングを行なうための評価に用

いられ、値が小さい程、潤滑油の低温特性がよいことを示す。

Shear Stability Index (S S I)

A S T M D 3 9 4 5 に基づいて測定を行なった。S S I は潤滑油中の共重合体成分が摺動下でせん弾力を受け分子鎖が切断することによる動粘度の損失の尺度であり、S S I が大きい値である程、動粘度の損失が大きいことを示す。

High Temperature High Shear Viscosity (H T H S)

A S T M D 4 6 2 4 に基づいて、 $150^{\circ}\text{C} / 10^6 \text{ s}^{-1}$ 測定を行なった。H T H S は高温、高せん断下での、潤滑油性能の評価に用いられ、H T H S 値が大きい程、高温での潤滑油性能がよいことを示す。

低温貯蔵安定性

- 1 8 $^{\circ}\text{C}$ で 2 週間冷却した後の流動性（外観）を観察し、以下のように評価した。

○：流動する

×：流動しない（ゲル状である）

重合例 1

[オレフィン系共重合体の合成]

充分窒素置換した容量 2 リットルの攪拌翼付オートクレーブ（S U S 製）に、 23°C でヘプタン 9 0 0 m l を挿入した。このオートクレーブに、攪拌翼を回し、かつ氷冷しながらプロピレン 5 N l、水素 9 0 m l を導入した。次にオートクレーブを 70°C まで加熱し、更に、全圧が 6 K G となるようにエチレンで加圧した。オートクレーブの内圧が 6 K G になった所で、トリイソブチルアルミニウム

(TIBA) の 1.0 mM/ml ヘキサン溶液 1.0 ml を窒素で圧入した。続いて、予め調製しておいた、トリフェニルカルベニウム (テトラキスペンタフルオロフェニル) ボレート を B 換算で 0.016 mM、[ジメチル (1-ブチルアミド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) シラン] チタンジクロリドを 0.0004 mM の量で含むトルエン溶液 3 ml を、窒素でオートクレーブに圧入し重合を開始した。その後、5 分間、オートクレーブを内温 70℃ になるように温度調製し、かつ圧力が 6 kg となるように直接的にエチレンの供給を行なった。重合開始 5 分後、オートクレーブにポンプでメタノール 5 ml を挿入し重合を停止し、オートクレーブを大気圧まで脱圧した。反応溶液に 3 リットルのメタノールを攪拌しながら注いだ。得られた溶媒を含む重合体を 130℃、13 時間、600 torr で乾燥して 32 g のエチレン・プロピレン共重合体を得た。得られたポリマーの性状を表 1 に示す。

重合例 2

プロピレン仕込み量を 4.5 Nl に変えたこと以外は、実施例 1 と同様に行ない、35 g のポリマーを得た。得られたポリマーの性状を表 1 に示す。

重合例 3

水素仕込み量を 150 ml に変えて重合時間を 4 分に変えたこと以外は、実施例 1 と同様に行ない、38 g のポリマーを得た。得られたポリマーの性状を表 1 に示す。

重合例 4

充分窒素置換した容量 2 リットルの攪拌翼付オートクレーブ (S

US製)に、23℃でヘプタン900mlを挿入した。このオートクレーブに、攪拌翼を回し、かつ氷冷しながらプロピレン38Nlを挿入した。次にオートクレーブを80℃まで加熱し、更に、全圧が8KGとなるようにエチレンで加圧した。オートクレーブの内圧が8KGになった所で、トリイソブチルアルミニウム(TIBA)の1.0mM/mlヘキサン溶液1.0mlを窒素で圧入した。続いて、予め調製しておいた、メチルアルミノキサンをAl換算で0.1mM、ビス(1,3-ジメチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリドを0.001mMの量で含むトルエン溶液3mlを、窒素でオートクレーブに圧入し重合を開始した。その後、60分間、オートクレーブを内温80℃になるように温度調製し、かつ圧力が8KGとなるように直接的にエチレンの供給を行なった。重合開始60分後、オートクレーブにポンプでメタノール5mlを挿入し重合を停止し、オートクレーブを大気圧まで脱圧した。反応溶液に3リットルのメタノールを攪拌しながら注いだ。得られた溶媒を含む重合体を130℃、13時間、600torrで乾燥して34gのエチレン・プロピレン共重合体を得た。得られたポリマーの性状を表1に示す。

表 1

＜エチレン・プロピレン共重合体の性状＞

ポリマー性状	重合例1	重合例2	重合例3	重合例4
エチレン含量 (wt %)	69.7	73.0	71.3	71.5
Mw (PS換算) ×10000	29.1	31.8	20.5	32.1
Mw/Mn	2.0	1.9	2.1	2.0
DSC-Tm (°C)	36.8	46.9	41.6	45.8
3.31×E-186	44.7	55.4	50.0	50.5
V (%)	1.5	1.4	1.5	1.8
10-0.1×E	3.0	2.7	3.0	2.9
I10/I2	9.4	9.8	8.2	6.3

重合例 5

充分窒素置換した容量2リットルの攪拌翼付連続重合反応器に、脱水精製したヘキサン1リットルを導入し、8.0 mmol/lに調製したエチルアルミニウムセスキクロリド ($\text{Al}(\text{C}_2\text{H}_5)_{1.5} \cdot \text{Cl}_{1.5}$) のヘキサン溶液を、500 ml/hの量で連続的に1時間供給した後、さらに触媒として0.8 mmol/lに調整した $\text{VO}(\text{OC}_2\text{H}_5)_2 \cdot \text{Cl}_2$ のヘキサン溶液を500 ml/hの量で、ヘキサンを500 ml/hの量で連続的に供給した。一方重合器上部から、重合液器内の重合液が常に1リットルになるように重合液を連続的に抜き出した。次にバブリング管を用いてエチレンを230リットル/hの量で、プロピレンを70リットル/hの量で、水素を4リットル/hの量で供給した。共重合反応は、重合器外部に取り付けられたジャケットに冷媒を循環させることにより35℃で行った。

上記条件で反応を行なうと、エチレン・プロピレン共重合体を含む重合溶液が得られた。得られた重合溶液は、塩酸で脱灰した後に、大量のメタノールに投入して、エチレン・プロピレン共重合体を析出させた後、130℃で24時間減圧乾燥を行なった。得られたポリマーの性状を表2に示す。

表 2

＜重合条件および共重合体の性状＞

	重合例5
重合条件	
エチレン (l/h)	230
プロピレン (l/h)	70
水素 (l/h)	4
ポリマー性状	
エチレン含量 (wt%)	70.5
Mw (PS換算) ×10000	30.2
Mw/Mn	2.0
DSC-Tm (℃)	26.7
3.31×E-186	47.4
V (%)	7.3
10-0.1×E	2.9
I10/I2	6.1

実施例 1

潤滑油基材として、鉱油100ニュートラル／鉱油150ニュートラル（ESSO社製）＝80／20の混合油を89.04重量％、粘度指数向上剤（粘度調整剤）として重合例1で得られたポリマーを0.46重量％、流動点降下剤としてアクループ133（三洋化成社製）を0.5重量％、清浄分散剤（ルブリゾール社製）を10重量部用いて、潤滑油を調製した。得られた潤滑油の性能評価と低

温時の流動性の評価を行なった。結果を表 3 に示す。

実施例 2 ～ 4、比較例 1

潤滑油基材として、鉱油 100 ニュートラル／鉱油 150 ニュートラル（ESSO 社製）＝80／20 の混合油と、粘度指数向上剤として重合例 2 ～ 5 で得られたポリマーとを表 3 に示した割合で使用了こと以外は、実施例 1 と同様にして潤滑油を調製した。得られた各潤滑油の性能評価と低温時の流動性の評価を行なった。結果を表 3 に示す。

表 3

<潤滑油の配合および性状>

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1
配合したエチレン・プロピレン共重合体の種類	重合例 1	重合例 2	重合例 3	重合例 4	重合例 5
配合（重量％）					
潤滑油基材	89.04	89.04	88.78	89.04	89.04
清浄分散剤	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0
流動点降下剤	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
共重合体	0.46	0.46	0.72	0.46	0.46
潤滑油性能					
K. V. @100℃ (mm ² /s)	10.08	10.16	10.15	10.10	10.05
SSI	49.0	48.0	32.0	47.0	46.0
CCS	2880	2780	2960	2820	2820
MRV	28500	23200	46000	24200	44500
低温貯蔵安定性	○	○	○	○	○
HTHS	3.25	3.24	3.28	3.20	3.06

重合例 6

[オレフィン系共重合体の合成]

充分窒素置換した容量 2 リットルの攪拌翼付オートクレーブ (S U S 製) に、23℃でヘプタン 900 ml を挿入した。このオートクレーブに、攪拌翼を回し、かつ氷冷しながらプロピレン 13 N l、水素 100 ml を導入した。次にオートクレーブを 70℃まで加熱し、更に、全圧が 6 K G となるようにエチレンで加圧した。オートクレーブの内圧が 6 K G になった所で、トリイソブチルアルミニウム (T I B A) の 1.0 mM/ml ヘキサン溶液 1.0 ml を窒素で圧入した。続いて、予め調製しておいた、トリフェニルカルベニウム (テトラキスペンタフルオロフェニル) ボレートを B 換算で 0.02 mM、[ジメチル (t-ブチルアミド) (テトラメチルーη⁵-シクロペンタジエニル) シラン] チタンジクロリドを 0.0005 mM の量で含むトルエン溶液 3 ml を、窒素でオートクレーブに圧入し重合を開始した。その後、5 分間、オートクレーブを内温 70℃になるように温度調整し、かつ圧力が 6 k g となるように直接的にエチレンの供給を行なった。重合開始 5 分後、オートクレーブにポンプでメタノール 5 ml を挿入して重合を停止し、オートクレーブを大気圧まで脱圧した。次いで、反応溶液に 3 リットルのメタノールを攪拌しながら注いだ。得られた溶媒を含む重合体を 130℃、13 時間、600 torr で乾燥して 31 g のエチレン・プロピレン共重合体を得た。得られたポリマーの性状を表 4 に示す。

重合例 7

充分窒素置換した容量 2 リットルの攪拌翼付オートクレーブ (S U S 製) に、23℃でヘプタン 900 ml を挿入した。このオートクレーブに、攪拌翼を回し、かつ氷冷しながらプロピレン 50 N l

を挿入した。次にオートクレーブを60℃まで加熱し、更に、全圧が8 K Gとなるようにエチレンで加圧した。オートクレーブの内圧が8 K Gになった所で、トリイソブチルアルミニウム (T I B A) の1.0 m M / m l ヘキサン溶液1.0 m l を窒素で圧入した。続いて、予め調製しておいた、メチルアルミノキサンをA l 換算で0.2 m M、ビス (1, 3 - ジメチルシクロペンタジエニル) ジルコニウムジクロリドを0.002 m M の量で含むトルエン溶液3 m l を、窒素でオートクレーブに圧入し重合を開始した。その後、60分間、オートクレーブを内温60℃になるように温度調整し、かつ圧力が8 K Gとなるように直接的にエチレンの供給を行なった。重合開始60分後、オートクレーブにポンプでメタノール5 m l を挿入して重合を停止し、オートクレーブを大気圧まで脱圧した。反応溶液に3リットルのメタノールを攪拌しながら注いだ。得られた溶媒を含む重合体を130℃、13時間、600 torrで乾燥して34 g のエチレン・プロピレン共重合体を得た。得られたポリマーの性状を表4に示す。

重合例 8

充分窒素置換した容量2リットルの攪拌翼付連続重合反応器に、脱水精製したヘキサン1リットルを導入し、8.0 m m o l / l に調整した、エチルアルミニウムセスキクロリド ($A l (C_2H_5)_{1.5} \cdot C l_{1.5}$) のヘキサン溶液を500 m l / h の量で連続的に1時間供給した後、さらに触媒として0.8 m m o l / l に調整した $V O (O C_2H_5) C l_2$ のヘキサン溶液を500 m l / h の量で、ヘキサンを500 m l / h の量で連続的に供給した。一方重合反応器上部から、

重合反応器内の重合液が常に１リットルになるように重合液を連続的に抜き出した。次にバブリング管を用いてエチレンを１８０ｌ／ｈの量で、プロピレンを１２０ｌ／ｈの量で供給した。共重合反応は、重合器外部に取り付けられたジャケットに冷媒を循環させることにより３５℃で行った。

上記条件で反応を行なうと、エチレン・プロピレン共重合体を含む重合溶液が得られた。得られた重合溶液は、塩酸で脱灰した後に、大量のメタノールに投入して、エチレン・プロピレン共重合体を析出させた後、１３０℃で２４時間減圧乾燥を行なった。得られたポリマーの性状を表４に示す。

表４

＜エチレン・プロピレン共重合体の性状＞

ポリマー性状	重合例６	重合例７	重合例８
エチレン含量 (wt %)	47.2	46.8	49.6
Mw (PS換算) ×10000	19.6	20.1	19.2
Mw/Mn	2.1	2.0	1.8
DSC-Tm (℃)	-38.5	-36.2	-40.8
3.31×E-186	-29.8	-31.1	-21.8
V (%)	2.3	3.2	15.9
10-0.1×E	5.3	5.2	5.0
I10/I2	7.2	6.0	6.2

実施例５

潤滑油基材として、鉱油１００ニュートラル／鉱油１５０ニュートラル（ＥＳＳＯ社製）＝８０／２０の混合油を８８．７８重量％、粘度指数向上剤として重合例６で得られたポリマーを０．７２重量

％、流動点降下剤としてアクループ 1 3 3（三洋化成社製）を 0.5 重量％、清浄分散剤（ルブリゾール社製）を 1 0 重量％用いて、潤滑油を調製した。得られた潤滑油の各性能と低温時の流動性の評価を行なった。結果を表 5 に示す。

実施例 6 および比較例 2

潤滑油基材として、鉱油 1 0 0 ニュートラル／鉱油 1 5 0 ニュートラル（E S S O 社製）＝8 0 ／2 0 の混合油と、粘度指数向上剤として重合例 7 および 8 で得られたポリマーとを表 5 に示した割合でそれぞれ使用したこと以外は、実施例 5 と同様にして潤滑油を調製した。得られた各潤滑油の各性能と低温時の流動性の評価を行なった。結果を表 5 に示す。

表 5

<潤滑油の配合および性状>

	実施例 5	実施例 6	比較例 2
配合したエチレン・プロピレン共重合体の種類	重合例 6	重合例 7	重合例 8
配合（重量％）			
潤滑油基材	8 8. 7 8	8 8. 7 7	8 8. 7 8
清浄分散剤	1 0. 0	1 0. 0	1 0. 0
流動点降下剤	0. 5	0. 5	0. 5
共重合体	0. 7 2	0. 7 3	0. 7 2
潤滑油性能			
K. V. @100℃ (mm ² /s)	1 0. 2 0	1 0. 2 4	1 0. 2 2
SSI	3 4. 0	3 4. 0	3 3. 0
CCS	3 2 4 0	3 2 0 0	3 3 0 0
MRV	4 1 0 0 0	4 0 0 0 0	4 8 0 0 0
低温流動性	○	○	○
HTHS	3. 2 8	3. 2 4	3. 0 8

重合例 9

[オレフィン系共重合体の合成]

充分窒素置換した容量 2 リットルの攪拌翼付オートクレーブ (S U S 製) に、23℃でヘプタン 900 ml を挿入した。このオートクレーブに、攪拌翼を回し、かつ氷冷しながらプロピレン 5 N l、水素 90 ml を導入した。次にオートクレーブを 70℃まで加熱し、更に、全圧が 6 K G となるようにエチレンで加圧した。オートクレーブの内圧が 6 K G になった所で、トリイソブチルアルミニウム (T I B A) の 1.0 mM / ml ヘキサン溶液 1.0 ml を窒素で圧入した。続いて、予め調製しておいた、メチルアルミノキサンを A l 換算で 0.01 mM、[ジメチル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) シラン] チタンジクロリドを 0.0004 mM の量で含むトルエン溶液 3 ml を、窒素でオートクレーブに圧入し重合を開始した。その後、5 分間、オートクレーブを内温 70℃になるように温度調整し、かつ圧力が 6 k g となるように直接的にエチレンの供給を行なった。重合開始 5 分後、オートクレーブにポンプでメタノール 5 ml を挿入して重合を停止し、オートクレーブを大気圧まで脱圧した。次いで、反応溶液に 3 リットルのメタノールを攪拌しながら注いだ。得られた溶媒を含む重合体を 130℃、13 時間、600 torr で乾燥して 35 g のエチレン・プロピレン共重合体を得た。得られたポリマーの性状を表 6 に示す。

重合例 10

充分窒素置換した容量 2 リットルの攪拌翼付オートクレーブ (S U S 製) に、23℃でヘプタン 900 ml を挿入した。このオート

クレーブに、攪拌翼を回し、かつ氷冷しながらプロピレン 6 N l、水素 120 m l を挿入した。次にオートクレーブを 40℃まで加熱し、更に、全圧が 6 K G となるようにエチレンで加圧した。オートクレーブの内圧が 6 K G になった所で、トリイソブチルアルミニウム (T I B A) の 1.0 m M / m l ヘキサン溶液 1.0 m l を窒素で圧入した。続いて、予め調製しておいた、トリフェニルカルベニウム (テトラキスペンタフルオロフェニル) ボレートを B 換算で、0.016 m M、[ジメチル (t-ブチルアミド) (テトラメチル- η^3 -シクロペンタジエニル) シラン] チタンクロリドを 0.0004 m M の量で含むトルエン溶液 3 m l を、窒素でオートクレーブに圧入し重合を開始した。その後、5 分間、オートクレーブを内温 40℃になるように温度調整し、かつ圧力が 6 K G となるように直接的にエチレンの供給を行なった。重合開始 5 分後、オートクレーブにポンプでメタノール 5 m l を挿入して重合を停止し、オートクレーブを大気圧まで脱圧した。反応溶液に 3 リットルのメタノールを攪拌しながら注いだ。得られた溶媒を含む重合体を 13.0℃、13 時間、600 torr で乾燥して、18 g のエチレン・プロピレン共重合体を得た。得られたポリマーの性状を表 6 に示す。

表 6

<エチレン・プロピレン共重合体の性状>

ポリマー性状	重合例9	重合例10
エチレン含量 (wt%)	70.5	70.8
Mw (PS換算) ×10000	29.5	31.9
Mw/Mn	2.0	1.8
DSC-Tm (°C)	44.5	39.0
3.31×E-186	47.4	58.3
V (%)	1.5	1.4
10-0.1×E	3.0	2.7
I10/I2	9.4	6.8

実施例7および実施例8

潤滑油基材として、鉱油100ニュートラル／鉱油150ニュートラル（ESSO社製）＝80／20の混合油と、粘度指数向上剤として重合例9および10で得られたポリマーを各0.46重量％、流動点降下剤として、アクループ133（三洋化成社製）0.5重量％、洗浄分散剤（ルブリゾール社製）を10重量部用いて、潤滑油の性能評価と低温時の流動性の評価を行なった。

結果を表7に示す。

表 7

<潤滑油の配合および性状>

	実施例7	実施例8
配合したエチレン・プロピレン共重合体の種類	重合例9	重合例10
配合 (重量%)		
潤滑油基材	89.04	89.04
清浄分散剤	10.0	10.0
流動点降下剤	0.5	0.5
共重合体	0.46	0.46
潤滑油性能		
K. V. @100°C (mm ² /s)	10.10	10.16
SSI	49.0	46.0
CCS	2910	2720
MRV	31500	22500
低温流動性	○	○
HTHS	3.25	3.20

請求の範囲

1. エチレンと炭素数 3 ～ 20 の α -オレフィンとの共重合体であって、下記の特性を有するエチレン・ α -オレフィン共重合体からなる潤滑油用粘度調整剤；

- (1) エチレン含量 (E) が 40 ～ 77 重量% であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (Mw) が 80,000 ～ 400,000 であり、
- (3) Mw/Mn が 2.4 以下であり、
- (4) DSC で測定した融点 (Tm) が 60℃ 以下であり、
- (5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (Tm : °C) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq Tm \quad \dots \quad (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 (V : %) と、エチレン含量 (E : 重量%) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \dots \quad (II)$$

2. 前記エチレン・ α -オレフィン共重合体がエチレン・プロピレン共重合体であることを特徴とする請求項 1 に記載の潤滑油用粘度調整剤。

3. (A) 潤滑油基材と、

(B) エチレンと炭素数 3 ～ 20 の α -オレフィンとの共重合体

であって、下記の特性を有するエチレン・ α -オレフィン共重合体とを含有し、

前記エチレン・ α -オレフィン重合体（B）を1～20重量％の割合で含有することを特徴とする潤滑油組成物；

- (1) エチレン含量（E）が40～77重量％であり、
- (2) GPCによるポリスチレン換算重量平均分子量（M_w）が80,000～400,000であり、
- (3) M_w/M_nが2.4以下であり、
- (4) DSCで測定した融点（T_m）が60℃以下であり、
- (5) エチレン含量（E：重量％）とDSCで測定した融点（T_m：℃）が下記式（I）を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq T_m \quad \cdots \quad (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合（V：％）と、エチレン含量（E：重量％）とが、下記式（II）を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \cdots \quad (II)$$

4. 前記（A）潤滑油基材と、前記（B）エチレン・ α -オレフィン共重合体とともに、さらに（C）流動点降下剤とを含有し、

前記（B）エチレン・ α -オレフィン共重合体を0.1～5重量％の割合で含有し、

前記（C）流動点降下剤を0.05～5重量％の割合で含有することを特徴とする潤滑油組成物。

5. 前記 (B) エチレン・ α -オレフィン共重合体が下記の特性を有する (B-1) エチレン・ α -オレフィン共重合体であることを特徴とする請求項 3 または 4 に記載の潤滑油組成物；

- (1) エチレン含量 (E) が 65 ~ 77 重量%であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (M_w) が 80,000 ~ 400,000 であり、
- (3) M_w / M_n が 2.4 以下であり、
- (4) DSC で測定した融点 (T_m) が 15 ~ 60 °C であり、
- (5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (T_m : °C) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq T_m \quad \cdots \quad (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 (V : %) と、エチレン含量 (E : 重量%) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \cdots \quad (II)$$

6. 前記 (B) エチレン・ α -オレフィン共重合体が下記の特性を有する (B-2) エチレン・ α -オレフィン共重合体であることを特徴とする請求項 3 または 4 に記載の潤滑油組成物；

- (1) エチレン含量 (E) が 40 ~ 55 重量%であり、
- (2) GPC によるポリスチレン換算重量平均分子量 (M_w) が 80,000 ~ 400,000 であり、

- (3) M_w / M_n が 2.4 以下であり、
 (4) DSC で測定した融点 (T_m) が -20°C 以下であり、
 (5) エチレン含量 (E : 重量%) と DSC で測定した融点 (T_m : $^\circ\text{C}$) が下記式 (I) を満たし、

$$3.31 \times E - 186 \geq T_m \quad \dots \quad (I)$$

かつ

- (6) 主鎖および長鎖分岐がある場合は長鎖分岐も含めた炭素原子中に存在する $\alpha\beta$ 炭素の割合 (V : %) と、エチレン含量 (E : 重量%) とが、下記式 (II) を満たす。

$$V \leq 10 - 0.1 \times E \quad \dots \quad (II)$$

7. 前記エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) がエチレン・プロピレン共重合体であることを特徴とする請求項 3～6 のいずれかに記載の潤滑油組成物。

8. 前記エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) が、

190 $^\circ\text{C}$ 、2.16 kg 荷重で測定したメルトインデックス (I_2) と、190 $^\circ\text{C}$ 、10 kg 荷重で測定したメルトインデックス (I_{10}) の比 (I_{10} / I_2) が、8 以上 16 以下の共重合体であることを特徴とする請求項 3～7 のいずれかに記載の潤滑油組成物。

9. 前記エチレン・ α -オレフィン共重合体 (B) が、

190 $^\circ\text{C}$ 、2.16 kg 荷重で測定したメルトインデックス (I_2) と、190 $^\circ\text{C}$ 、10 kg 荷重で測定したメルトインデックス (I_{10}) の比 (I_{10} / I_2) が、8 以上 16 以下の共重合体であることを特徴とする請求項 3～7 のいずれかに記載の潤滑油組成物。

10) の比 (I_{10}/I_2) が 5 以上 8 未満の共重合体であることを特徴とする請求項 3 ～ 7 のいずれかに記載の潤滑油組成物。